

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Application No. : To Be Assigned Confirmation No. :
Applicant : Olav FINKENWIRTH, et al.
Filed : January 21, 2004
TC/A.U. : To Be Assigned
Examiner : To Be Assigned
Docket No. : 080437.53069US
Customer No. : 23911
Title : Seal Construction For A Fuel Cell Electrolyser And
Process For Making A Fuel Cell With Same

CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. §119

Mail Stop: New Application

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450


Sir:

The benefit of the filing date of prior foreign application No. 103 02 124.8, filed in Germany on 21 January 2003, is hereby requested and the right of priority under 35 U.S.C. §119 is hereby claimed.

In support of this claim, filed herewith is a certified copy of the original foreign application.

Respectfully submitted,

January 21, 2004



Donald D. Evenson
Registration No. 26,160
Lawrence E. Carter
Registration No. 51,532

CROWELL & MORING, LLP
Intellectual Property Group
P.O. Box 14300
Washington, DC 20044-4300
Telephone No.: (202) 624-2500
Facsimile No.: (202) 628-8844

DDE:LEC:adb
Document#300323

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 103 02 124.8

Anmeldetag: 21. Januar 2003

Anmelder/Inhaber: Bayerische Motoren Werke Aktiengesellschaft,
München/DE

Bezeichnung: Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle bzw. einen
Elektrolyseur sowie Verfahren zu dessen Herstellung
und Brennstoffzelle bzw. Elektrolyseur aufweisend
den Dichtungsaufbau

IPC: H 01 M 8/02

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der
ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 4. Dezember 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag



Letang

5

Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle bzw. einen Elektrolyseur sowie Verfahren zu dessen Herstellung und Brennstoffzelle bzw. Elektrolyseur aufweisend den Dichtungsaufbau

10

Die Erfindung betrifft einen Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle bzw. einen Elektrolyseur nach dem Oberbegriff des Anspruchs 1, ein Verfahren zur Herstellung des Dichtungsaufbaus nach dem Oberbegriff des Anspruchs 19 und eine Brennstoffzelle bzw. einen Elektrolyseur nach dem Oberbegriff des Anspruchs 24.

15

20

25

30

35

Aus dem Stand der Technik ist ein Brennstoffzellenstapel 1 gemäß Fig. 3 bekannt. Dieser Brennstoffzellenstapel 1 weist zwei oder mehrere Einzelbrennstoffzellen 2 auf, welche turmartig übereinander gestapelt sind. Die Brennstoffzellen 2 besitzen eine Elektrolytschicht 3, eine auf der einen Flachseite der Elektrolytschicht 3 angeordnete Kathodenschicht 4 und eine auf der anderen Flachseite der Elektrolytschicht 3 angeordnete Anodenschicht 5. Zur Kontaktierung einer Nachbarbrennstoffzelle 2 sitzt auf der Kathodenschicht 4 eine Kontaktierungsschicht 6 auf. Weiterhin weist jede Einzelbrennstoffzelle 2 eine erste Separatorplatte 7 und eine zweite Separatorplatte 8 auf. Die Separatorplatten 7, 8 umgrenzen einen Brenngasraum 9, wobei die Anodenschicht 5 in den Brenngasraum 9 hineinragt. Der Brenngasraum 9 steht derart mit der Anodenschicht 5 in Verbindung, dass Brenngas, welches den Brenngasraum 9 durchströmt (Pfeilrichtung 10) mit der freien Oberfläche der Anodenschicht 5 in Kontakt gelangen kann.

Zwischen einer zweiten Separatorplatte 8 einer Brennstoffzelle 2 und einer ersten Separatorplatte 7 einer benachbarten Brennstoffzelle 2 ist ein Oxidationsgasraum 11 ausgebildet, welcher von Oxidationsgas (Pfeilrichtung 12) durchströmbar ist, so dass die freie Oberfläche der Kathodenschicht 4, welche in den Oxidationsgasraum 11 hineinragt, mit Oxidationsgas anströmbar ist.

Die Kontaktierungsschicht 6, welche - wie oben beschrieben - mit ihrer einen Flachseite mit der Kathodenschicht 4 in Kontakt steht, berührt mit ihrer zweiten Flachseite eine zum Oxidationsgasraum 11 hingewandte Flachseite einer ersten Separatorplatte 7 der benachbarten Einzelbrennstoffzelle 2.

Alle Brenngasräume 9 eines Brennstoffzellenstapels 1 stehen über korrespondierende Öffnungen 13 in den ersten und zweiten Separatorplatten 7, 8 miteinander in Verbindung. Die Brenngasräume 9 sind im Bereich zwischen einer zweiten Separatorplatte 8 und einer ersten Separatorplatte 7 einer benachbarten Einzelbrennstoffzelle 2 mittels einer Dichtschicht 14 gasdicht von den Oxidationsgasräumen 11 getrennt, sodass ein Brennstoffzufuhrkanal 15 und ein Abfuhrkanal 16 für die Reaktionsprodukte ausgebildet ist. Somit kann Brenngas entlang der Pfeilrichtung 18 den Brenngasräumen 9 zugeführt werden und durchströmt diesen entlang der Pfeilrichtung 10, wobei das Brenngas in einer Brennstoffzelle 2 entlang der Anodenschicht 5 oxidiert wird und das Reaktionsprodukt den Brennstoffzellenstapel 1 entlang der Pfeilrichtung 19 wieder verlassen kann. Über entsprechend ausgebildete Zufuhr- und Abfuhrkanäle wird analog zum Brenngas das Oxidationsgas durch die Oxidationsgasräume 11 geleitet.

Die Separatorplatten 7, 8 eines vorbeschriebenen Brennstoffzellenstapels 1 haben somit einerseits die Funktion,

die in Reihe geschalteten Einzelbrennstoffzellen 2 elektrisch leitend zu verbinden und zum anderen die Separierung von Brenn- und Oxidationsgas sicherzustellen. Zu diesem Zweck sind die Separatorplatten 7, 8 (auch Bipolarplatten oder Interkonnektorplatten genannt) aus einem Brenn- und Oxidationsgas-dichten und elektronisch leitfähigen Material ausgebildet, wobei sich insbesondere chromhaltige Legierungen, ferritische Stähle und Perowskite bewährt haben. Um eine zuverlässige Separierung der Oxidations- und der Brenngase zu gewährleisten, ist es erforderlich, jeweils zwischen der zweiten Separatorplatte 8 einer ersten Brennstoffzelle 2 und der ersten Separatorplatte 7 einer benachbarten Brennstoffzelle 2 für eine zuverlässige Abdichtung des Zuführkanals 15 sowie des Produktabführkanals 16 vom Oxidationsgasraum 11 zu sorgen.

Aus dem Stand der Technik ist es bekannt, die Dichtschicht 14 beispielsweise aus Glaskeramikloten auszubilden. Diese Glaskeramiklote werden üblicherweise als Pasten oder angelöste Folien vor dem Fügen eines Brennstoffzellenstapels 1 auf die relevanten Dichtflächen der Separatorplatten 7, 8 aufgetragen.

Diese üblicherweise bei Festelektrolytbrennstoffzellen zum Einsatz kommenden Dichtungsmaterialien (Glaskeramiklote) haben zwei sich gegenläufig beeinflussende Eigenschaften. Der thermische Ausdehnungskoeffizient des Dichtungsmaterials ist im Verhältnis zu den Ausdehnungskoeffizienten der meisten für die Bipolarplatten 7, 8 verwendeten Materialien deutlich kleiner. Dies kann beim schnellen Aufheizen des Brennstoffzellenstapels 1 zu thermisch induzierten Spannungsrissen in der Dichtschicht 14 und damit zum Versagen ihrer Dichtwirkung führen. Dies ist insbesondere bei Festelektrolytbrennstoffzellen (so genannte SOFC, solid oxid fuel cell), welche im Hochtemperaturbereich arbeiten,

besonders kritisch. Insbesondere für Festelektrolytbrennstoffzellen, welche durch häufiges In-Betrieb-Nehmen und Abschalten belastet sind, stellt dies ein bislang nur unbefriedigend gelöstes Problem dar.

5

Aus dem Stand der Technik ist es bekannt, den Ausdehnungskoeffizienten der Dichtungsmaterialien durch Zusätze zu erhöhen. Diese Zusätze führen aber häufig zu einer Herabsetzung des elektrischen Widerstands des Dichtungsmaterials bei den typischerweise hohen Betriebstemperaturen einer Festelektrolytbrennstoffzelle. Hierdurch entstehen über die Dichtungsschicht 14 zwischen einer zweiten Separatorplatte 8 und einer ersten Separatorplatte 7 zweier benachbarter Einzelbrennstoffzellen 2 unerwünschte Kriechströme, welche den elektrischen Wirkungsgrad eines Brennstoffzellenstapels 1 verschlechtern.

Ein weiterer Nachteil der aus dem Stand der Technik gemäß Fig. 3 bekannten Dichtung ist, dass die bekannten Materialien für die Dichtungsschicht 14 ein im Vergleich zur Kontaktierungsschicht 6 anderes Kompressionsverhalten und/oder Schrumpfungsverhalten aufweisen, wodurch es bei der Montage eines Brennstoffzellenstapels 1 zu unerwünschten Ungenauigkeiten kommt, welche eine zuverlässige Kontaktierung der Kontaktierungsschicht 6 mit einer benachbarten Separatorplatte 7 in Frage stellen kann. Weiterhin ist von Nachteil, dass das Bereitstellen einer geeigneten Dichtungsschicht 14 vor dem Fügen des Brennstoffzellenstapels 1 aufwändig und teuer ist, weil beispielsweise ein Dichtmittelstrang herzustellen ist oder im Fall einer folienartigen Ausbildung der Dichtungsschicht 14 diese separat herzustellen und vor dem Fügeprozess zu positionieren bzw. einzulegen ist.

Die erwähnten Glaskeramik-Lote haben zwei gravierende Nachteile:

1. Der thermische Ausdehnungskoeffizient von Glaskeramiken ist im Verhältnis zu den Ausdehnungskoeffizienten der meisten für die Bipolarplatten verwendeten Materialien (Chromlegierungen, ferritische Stähle, Perowskite, etc.) deutlich kleiner. Dies kann beim schnellen Aufheizen des Brennstoffzellenstapels (Brennstoffzellen-Stacks) zu thermisch induzierten Spannungsrissen in den Dichtungen und damit zum Versagen der Dichtwirkung führen. Dies ist beim mobilen Einsatz des Brennstoffzellenstapels, z. B. in einer Hilfsenergieversorgungseinheit in einem Automobil, als besonders kritisch anzusehen.

2. Glaskeramik-Lote schrumpfen während des Fügeprozesses, d. h. während des Verpressens und des ersten Aufheizens auf Betriebstemperatur 750-900 °C, auf etwa 40%-70% ihres Ausgangsvolumens zusammen. Der gesamte Stapel sinkt demnach während des Fügeprozesses zusammen. Um die Dichtigkeit des Stapels zu gewährleisten, muss die poröse elektrische Kontaktierungsschicht 6 der Brennstoffzelle (s. Fig. 3) ebenfalls um die gleiche Dicke schrumpfen. Die Schwierigkeit besteht nun in der Abstimmung des Schrumpfungsverhaltens von Dichtungs- und Kontaktierungsschicht. Die für die elektrische Kontaktierung üblicherweise verwendeten pastösen Keramiksuspensionen schrumpfen schon bei niedrigen Temperaturen und verfestigen sich bei Temperaturen größer als 400 °C. Bei den Glaskeramik-Loten setzt der Schrumpfprozess erst bei Temperaturen > 500 °C ein und ist erst bei Temperaturen > 750 °C abgeschlossen. Die beiden Prozesse laufen demnach nicht simultan ab und führen häufig zu Gasundichtigkeiten, mangelnder elektrischer

Kontaktierung oder einem Bruch der SOFC (Festelektrolyt-Brennstoffzelle) aufgrund lokal zu hoher Anpresskräfte.

Ausgehend von den vorbenannten Nachteilen der Glaskeramik-Lote wurde die Entwicklung einer alternativen anorganischen Dichtmasse betrieben. Sie ist im Ausdehnungskoeffizient besser an die eingesetzten Bipolarplattenmaterialien angepasst und weist nur eine minimale Schrumpfung während des Fügeprozesses auf, sodass die Notwendigkeit von speziell in ihrem Schrumpfungsverhalten angepassten elektrischen Kontaktierungsmaterialien entfällt. Diese Dichtpaste weist aber als Nachteil ein bei Betriebstemperatur unzureichendes elektronisches Isoliervermögen auf. Dieses führt beim Einsatz in Festelektrolyt-Brennstoffzellen-Stapeln zu elektrischen Kriechströmen (Kurzschlüssen) zwischen den einzelnen Bipolarplatten und damit zu Leistungseinbußen des Systems.

Aus der DE 19515457 C1 ist ein Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle bekannt, bei dem die Elektrolytschicht aus einer mit Elektrolyt getränkten Elektrolytmatrix besteht und die Elektrolytmatrix im Dichtungsbereich über die Elektroden hinaus verlängert ausgebildet ist, wobei im Dichtungsbereich die Tränkung der Elektrolytmatrix mit einem dem Elektrolyten chemisch verwandten Material erfolgt, welches bei der Arbeitstemperatur der Brennstoffzelle fest ist. Die vorgeschlagene Lösung bezieht sich jedoch auf eine so genannte Schmelzkarbonat-Brennstoffzelle, welche einen in einer Elektrolytmatrix flüssig vorhandenen Schmelzelektrolyten aufweist. Bei dieser Art von Brennstoffzellen spricht man üblicherweise von einem Nassdichtungsbereich, da der im Betriebszustand schmelzflüssige Elektrolyt im Randbereich einen Nassbereich bildet, den es abzudichten gilt. Diese Lösung kann jedoch nicht auf eine Festelektrolytbrennstoffzelle übertragen werden, da bei einer

solchen Festelektrolytbrennstoffzelle (SOFC: Solid Oxid Fuel Cell) keine so genannten Nasselektroden oder Nasselektrolyten existieren und somit das der DE 19515457 C1 zugrunde liegende Problem Bauart-bedingt gar nicht auftritt.

5

Aus der DE 19960516 A1 ist eine Dichtung für eine Brennstoffzelle bekannt, bei der eine Elektrolytmembran in den Randdichtungsbereich zwischen zwei Separatorplatten hinein verlängert ist und auf der Elektrolytmembran eine zweischichtige Gummidichtung angeordnet ist. Für den Dichtungsaufbau wird vorgeschlagen, die eine Schicht aus weichem Gummischaum und die zweite Schicht aus einem härteren Gummi, z. B. Silikongummi oder Butylgummi auszubilden. Diese Druckschrift befasst sich mit einer so genannten Niedertemperatur-Brennstoffzelle mit einem Polymermembranelektrolyten. Diese so genannten Niedertemperatur-Brennstoffzellen haben Betriebstemperaturen, welche im Bereich zwischen 60°C und 80°C liegen. Solche Brennstoffzellen sind mit einer Festelektrolytbrennstoffzelle hinsichtlich ihrer Betriebstemperaturen nicht vergleichbar, da üblicherweise Festelektrolytbrennstoffzellen in Temperaturbereichen zwischen 700 und 1100 °C betrieben werden. Die vorgeschlagene Dichtung aus der DE 19960516 A1 kann somit aufgrund der hohen Betriebstemperaturen einer Festelektrolytbrennstoffzelle nicht auf diese übertragen werden.

30

Aus der JP 10092450 A ist als Stand der Technik ein Aufbau bekannt, welcher mit dem der Fig. 2 vergleichbar ist.

Aufgabe der Erfindung ist es, einen Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle bzw. einen Elektrolyseur, insbesondere eine Festelektrolytbrennstoffzelle anzugeben, welcher unempfindlich ist gegenüber thermomechanischen Spannungen und gleichzeitig

eine elektrische, insbesondere eine elektronische Isolierung, d. h. eine Undurchlässigkeit für Elektronen, sicherstellt. Weiterhin soll der erfindungsgemäße Dichtungsaufbau einfach und kostengünstig, insbesondere gegenüber dem Stand der Technik ohne zusätzliche Arbeitsschritte herstellbar sein. Außerdem soll die Kompressibilität und/oder die Schrumpfscharakteristik des Dichtungsaufbaus der der Kontaktierungsschicht angepasst sein und somit für eine erleichterte und insbesondere prozesssicherere Montage sorgen.

10

Diese Aufgabe wird mit einem Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle mit den Merkmalen des Anspruchs 1 und einem Verfahren zur Herstellung des Dichtungsaufbaus mit den Merkmalen des Anspruchs 19 sowie mit einer Brennstoffzelle mit den Merkmalen des Anspruchs 24 gelöst. Vorteilhafte Ausführungsformen der Erfindung sind in den jeweils von den unabhängigen Ansprüchen abhängigen Ansprüchen angegeben.

15

Um dem mangelnden elektrischen Isolationsvermögen bestimmter Dichtungsmaterialien zu begegnen, wird im Sinne dieser Erfindung durch einen gezielten Oxidationsprozess entweder auf den Dichtflächen der Bipolarbleche selbst oder auf zusätzlich zwischen den Dichtflächen der Bipolarbleche eingefügten Isolationsblechen eine Außenhaut aus Aluminiumoxid (Al_2O_3) in γ -Modifikation erzeugt. $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ weist einen sehr hohen elektrischen Widerstand und eine ausgezeichnete Korrosionsstabilität sowohl in oxidierenden als auch reduzierenden Medien auf. Der Einsatz von zusätzlichen Isolationselementen wird dann notwendig, wenn die Verwendung von $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ -bildenden Stahlsorten als Bipolarmaterial nicht erwünscht ist, z. B. weil dadurch auch die elektrische Stromleitung zwischen Bipolarblech und Zellen eingeschränkt wird.

25

30

Die Aluminiumoxid-Außenhaut wird durch das gezielte Oxidieren von Stahlblechen mit hohem Aluminiumgehalt ($> 2\%$, vorzugsweise $> 4,5\%$) bei Temperaturen $> 900^{\circ}\text{C}$, vorzugsweise $> 1050^{\circ}\text{C}$ erzeugt. Um die Korrespondenz der thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Bipolarblechen, Dichtmittel und ggf. Isolationsblech zu gewährleisten, kommen vor allem ferritische Stähle mit Chromgehalten von ca. 20 % in Frage (z. B. die Werkstoffnummern 1.4765 und 1.4767). Da diese Materialien als Bänder in den verschiedensten Dicken kommerziell erhältlich sind, können den ggf. einzusetzenden Isolationsblechen gleichzeitig die Funktion des Distanzhalters zwischen den einzelnen Bipolarplatten übertragen werden, welche im Stand der Technik von der Dichtung selbst übernommen wurde. Die Bänder sind leicht formgebend zu bearbeiten (Prägen, Stanzen, Schneiden) und können prinzipiell in jede beliebige - der Bipolarplatte angepasste - Form gebracht werden. Beim Fügen des Brennstoffzellenstapels werden sie beidseitig zwischen den Bipolarplatten eingedichtet.

Die Unterbindung elektrischer Kurz- und Kriechströme zwischen den einzelnen Zellelementen im Brennstoffzellenstapel ist eine unabdingbare Notwendigkeit. Die Applikation eines elektrisch isolierenden Elements zwischen den Bipolarplatten von Festelektrolyt-Brennstoffzellenstapeln ermöglicht den Einsatz von elektrisch nur unzureichend isolierenden Dichtungswerkstoffen zur Separierung und Verteilung der Brenn- und Oxidationsgase. Die Option zur Verwendung dieser bei SOFC-Betriebstemperatur leitfähigen Dichtungen ermöglicht ein neuartiges Fügekonzept des Brennstoffzellenstapels, bei dem auf eine aufwendige und schwer zu realisierende Anpassung des Schrumpfungverhaltens von Dichtung und poröser elektrischer Kontaktierungsschicht der Festelektrolyt-Brennstoffzelle verzichtet werden kann. Der Fügeprozess wird dadurch wesentlich vereinfacht.

Darüber hinaus ermöglicht die Verwendung elektrisch leitender Dichtungswerkstoffe die Verwendung von Materialien, die besser an die thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Bipolarplattenmaterialien angepasst sind, sodass die Wahrscheinlichkeit des Versagens der Dichtfunktion aufgrund schneller thermischer Zyklen - wie z. B. für den Einsatz der Festelektrolyt-Brennstoffzelle in einer mobilen Hilfsenergie-Versorgungseinheit gefordert werden - vermindert wird.

10

Der Einsatz der besagten elektrischen Isolationsschichten ist besonders dann vorteilhaft, wenn diese preisgünstig aus kommerziell verfügbaren Materialien gefertigt werden können. Dies trifft für die Verwendung von voroxidierten ferritischen Stählen zu, nicht aber z. B. für sinterkeramische Isolationselemente.

15

Die beiden prinzipiell möglichen Aufbringungsorte der Al_2O_3 -Isolationsschicht - direkt auf das Bipolarblech oder auf zusätzliche Isolationsbleche - bringen jeweils spezifische Vorteile mit sich. Während die direkte Oxidation der Bipolarfläche keine zusätzlichen Komponenten im Stapel benötigt und somit auch die Anzahl der Arbeitsvorgänge beim Fügen des Brennstoffzellenstapels nicht zunimmt, wirkt sich bei der Einbringung zusätzlicher Isolationselemente die Kombination von elektrischen und mechanischen Aufgaben der Isolationselemente vorteilhaft aus. Diese Kombination wird erreicht, wenn das Isolationselement gleichzeitig Distanzhalterfunktion zwischen benachbarten Bipolarblechen von dem Dichtungsmaterial übernimmt und die Dichtung so auf eine minimale - allein durch die Dichtfunktion vorgegebene - Dicke reduziert werden kann.

20

25

30

Im Folgenden wird die Erfindung anhand der Figuren beispielhaft näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 eine schematische Querschnittsdarstellung eines
5 erfindungsgemäßen Brennstoffzellenstapels, aufweisend zwei Einzelbrennstoffzellen, welche einen erfindungsgemäßen Dichtungsaufbau aufweisen;

Fig. 2 eine schematische Querschnittsdarstellung einer
10 zweiten Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Brennstoffzellenstapels, aufweisend zwei Einzelbrennstoffzellen, welche mit einer zweiten Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Dichtungsaufbaus ausgestattet sind;

15

Fig. 3 eine schematische Querschnittsdarstellung eines Brennstoffzellenstapels gemäß dem Stand der Technik.

Ein erfindungsgemäßer Brennstoffzellenstapel 1 (Fig. 1) weist
20 zumindest zwei Einzelbrennstoffzellen 2, bevorzugt eine Vielzahl von Einzelbrennstoffzellen 2 auf, welche turmartig übereinander gestapelt sind. Die Einzelbrennstoffzellen 2 besitzen in bekannter Art und Weise eine Elektrolytschicht 3, eine Kathodenschicht 4 und eine Anodenschicht 5 und sind
25 bevorzugt als so genannte Festelektrolyt-Brennstoffzellen (SOFC-Brennstoffzellen) ausgebildet. Die Anodenschicht 5 ist ggf. auf einer tragenden Substratschicht (nicht gezeigt) angeordnet. Die Kathodenschicht 4 steht mit ihrer freien Flachseite mit einer Kontaktierungsschicht 6 in Verbindung,
30 welche die Kathodenschicht 4 mit einer ersten Separatorplatte 7 (auch Bipolarplatte oder Interkonnektorplatte genannt) einer benachbarten Einzelbrennstoffzelle 2 elektrisch verbindet. Vergleichbar zum Stand der Technik weist ein erfindungsgemäßer Brennstoffzellenstapel 1 Brenngasräume 9 auf, welche über

einen Brenngaszuführkanal 15 entlang der Pfeilrichtungen 18, 10, 19 von Brenngas durchströmbar sind. Über einen Abführkanal 16 können überschüssiges Brenngas und Reaktionsprodukte abgeführt werden. Ebenso weist der erfindungsgemäße
5 Brennstoffzellenstapel 1 Oxidationsgasräume 11 auf, welche über geeignete Zuführ- und Abführkanäle (nicht gezeigt) von Oxidationsgas durchströmt werden können. Die Kontaktierungsschicht 6 ist elektrisch leitend und porös ausgebildet, sodass das Oxidationsgas entlang der
10 Pfeilrichtung 12 durch die Kontaktierungsschicht 6 hindurchströmen kann.

Ein erfindungsgemäßer Brennstoffzellenstapel 1 weist zur Trennung der Brenngase von den Oxidationsgasen einen
15 erfindungsgemäßen Dichtungsaufbau 20 auf, welcher erfindungsgemäß mehrschichtig, insbesondere zumindest zweischichtig, ausgebildet ist.

Gemäß einer ersten Ausführungsform des erfindungsgemäßen
20 Dichtungsaufbaus 20 weist dieser eine Dichtungsschicht 21 und eine Isolierschicht 22 auf. Die Isolierschicht 22 besteht aus einem Metalloxid, insbesondere einem Aluminiumoxid (Al_2O_3), welches in besonders bevorzugter Weise in der so genannten γ -
Modifikation ausgebildet ist. Al_2O_3 in der γ -Modifikation weist
25 einen sehr hohen elektrischen Widerstand und eine ausgezeichnete Korrosionsstabilität sowohl in oxidierenden als auch in reduzierenden Medien auf.

Die Isolierschicht 22 ist bei der Ausführungsform gemäß Fig. 1
30 in sämtlichen erforderlichen Dichtungsbereichen 25 zwischen zwei benachbarten Einzelbrennstoffzellen 2 auf einer einem Oxidationsgasraum 11 zugewandten Oberseite 26 einer der Bipolarplatten 7, 8 angeordnet. Die Anordnung der Dichtungsschicht 21 auf einer freien Oberfläche einer

Bipolarplatte 7, 8 ist besonders dann von Vorteil, wenn die Bipolarplatten 7, 8 aus einem Stahlwerkstoff mit hohem Aluminiumgehalt ($> 2\%$) hergestellt sind. In diesem Fall kann die Aluminiumoxid-Isolierschicht durch gezieltes, insbesondere lokales Oxidieren der Bipolarplatten 7, 8 in den Dichtungsbereichen 25, bevorzugt oberhalb von $900\text{ }^{\circ}\text{C}$, hergestellt werden. Auf einer freien Oberfläche 22a der Isolierschicht 22 ist die Dichtungsschicht 21 angeordnet, wobei sichergestellt sein muss, dass die Dichtungsschicht 21 mit höchstens einer der Bipolarplatten 7 oder 8 in Verbindung steht und anderendig nur mit der Isolierschicht 22 in Berührung kommt.

Die Dichtungsschicht 21 ist in bekannter Art und Weise beispielsweise aus einem Glaskeramik-Lot ausgebildet, welches mittels Zusätzen an den thermischen Ausdehnungskoeffizient der Separatorplatten 7, 8 angepasst ist. Vorteilhafterweise ist die Dichtungsschicht 21 in ihrem Schrumpfungsverhalten bei Erwärmung an das Schrumpfungsverhalten der Kontaktierungsschicht 6 angepasst. Eine ggf. durch geeignete Zusätze bewirkte erhöhte Leitfähigkeit der Dichtungsschicht 21 bei Betriebstemperatur der Brennstoffzellen 2, insbesondere im Temperaturbereich von $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ bis $900\text{ }^{\circ}\text{C}$, in dem üblicherweise Festelektrolyt-Brennstoffzellen (so genannte SOFC-Brennstoffzellen) betrieben werden, kann wegen der zuverlässigen elektrischen Isolation durch die Isolationsschicht 22 ohne weiteres in Kauf genommen werden.

Zur gasdichten Abdichtung der Zuführ- und Abführkanäle für das Oxidationsgas, welche in den Fig. 1 und 2 nicht gezeigt sind, ist ein erfindungsgemäßer Dichtungsaufbau 20 entsprechend zwischen einer ersten Separatorplatte 7 und einer zweiten Separatorplatte 8 einer Einzelbrennstoffzelle 2 angeordnet,

damit die Brenngasräume 9 von Oxidationsgas-führenden Kanälen getrennt sind.

Bevorzugt bedeckt die Isolierschicht 22 auf der
5 Separatorplatte 7 oder 8, auf der sie angebracht ist, eine größere Fläche, als sie von der Dichtungsschicht 21 benötigt wird, damit sichergestellt ist, dass keine "elektrische Brücke" durch Material der Dichtungsschicht 21 beim Fügen des Brennstoffzellenstapels ausgebildet werden kann.

10

Die erfindungsgemäße Ausführungsform gemäß Fig. 1 hat den Vorteil, dass eine verbesserte Dichtungs- und Isolierwirkung
zwischen zwei Einzelbrennstoffzellen 2 erreicht werden kann, ohne dass bei der Montage des Brennstoffzellenstapels 1
15 gegenüber bisheriger Montageabläufe zusätzliche Montageschritte notwendig sind. Lediglich bei der Fertigung der Separatorplatten 7, 8 muss für die Ausbildung der Isolierschicht 22, beispielsweise aus Al_2O_3 , gesorgt werden, was jedoch in einfacher Art und Weise durch einen
20 Oxidationsprozess bei der Herstellung der Separatorplatten auch vollautomatisch geschehen kann. Somit ist eine prozesssichere und zuverlässige Montage eines erfindungsgemäßen Brennstoffzellenstapels 1 gemäß Fig. 1
sichergestellt.

25

Bei einer zweiten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Dichtungsaufbaus gemäß Fig. 2 ist die Isolierschicht 22 auf einer Trägerschicht 23 angeordnet, wobei zwischen der Isolierschicht 22 und einer benachbarten Separatorplatte 7
30 eine erste Dichtungsschicht 21a und zwischen der Trägerschicht 23 und deren benachbarter Separatorplatte 8 eine Dichtungsschicht 21b angeordnet ist. Somit ist der Dichtungsaufbau 20 in diesem Ausführungsbeispiel zumindest vierschichtig, aufweisend zumindest eine Trägerschicht 23,

zumindest eine Isolierschicht 22 und zumindest zwei Dichtungsschichten 21a, 21b, ausgebildet.

Die Isolierschicht 22 ist bei diesem Ausführungsbeispiel aus dem gleichen Werkstoff ausgebildet wie die Isolierschicht 22 des Ausführungsbeispiels gemäß Fig. 1. Die Dichtungsschichten 21a, 21b sind bevorzugt aus demselben Material ausgebildet wie die Dichtungsschicht 21 des Ausführungsbeispiels gemäß Fig. 1. Die Trägerschicht 23 ist beispielsweise ein Stahlblech mit hohem Aluminiumgehalt ($> 2\%$). Bei solchen Stahlblechen kann bei Temperaturen oberhalb von $900\text{ }^{\circ}\text{C}$ die Isolierschicht 22 aus Aluminiumoxid durch gezieltes Oxidieren hergestellt werden.

Besonders bevorzugt sind ferritische Stähle mit Chromgehalten von ca. 20% (z. B. Werkstoff Nr. 1.4765, insbesondere mit einem Aluminiumgehalt von $5-6\%$, Werkstoff Nr. 1.4767, insbesondere mit einem Aluminiumgehalt von $4,5-5,5\%$). Diese Materialien eignen sich für die Ausbildung der Trägerschicht 23 in besonderem Maße, wenn die Gleichartigkeit bzw. Korrespondenz der thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Bipolarbleche 7, 8, Dichtmittel der Dichtungsschicht 21 und der Isolationsschicht 22 erreicht werden soll. Besonders bevorzugt sind die genannten Werkstoffe auch, weil sie als Bänder in den verschiedensten Dicken kommerziell erhältlich sind und leicht formgebend zu bearbeiten, z. B. zu prägen, zu stanzen und zu schneiden sind.

Im Falle der Ausbildung der Trägerschicht 23 aus einem Stahlblech kann durch geeignete Auswahl der Blechdicke die Trägerschicht 23 vorteilhafterweise eine Zusatzfunktion, nämlich die Funktion eines Abstandshalters zwischen zwei benachbarten Einzelbrennstoffzellen 2 wahrnehmen.

Somit kann in einfacher Art und Weise die Schrumpfung des gesamten Dichtungsaufbaus 20 gemäß dem Ausführungsbeispiel nach Fig. 2 an die Schrumpfung der Kontaktierungsschicht 6 angepasst werden. Z. B. kann bei Verwendung eines Dichtungsmaterials für die Dichtungsschichten 21a, 21b, welches eine hohe Schrumpfung aufweist, die Dicke der Trägerschicht 23 relativ groß gewählt werden, sodass die Summe der Schrumpfungen der Dichtungsschichten 21a, 21b der Gesamtschrumpfung der Kontaktierungsschicht 6 entspricht. Bei einem Dichtungsmaterial, welches eine nur sehr geringe Schrumpfung aufweist, kann durch die Wahl einer dünneren Trägerschicht 23 die verbleibende Dichtungsschichtdicke der Dichtungsschichten 21a, 21b derart groß gewählt werden, dass die Summe der Schrumpfungen der Dichtungsschichten 21a, 21b der Gesamtschrumpfung der Kontaktierungsschicht 6 entspricht.

Die Abstimmung der einzelnen Schichtdicken der ersten Dichtungsschicht 21a, der zweiten Dichtungsschicht 21b und der Trägerschicht 23 kann in einer begrenzten Anzahl von Versuchen vom Fachmann derart festgelegt werden, dass der Dichtungsaufbau 20 in seinem Schrumpfungsverhalten dem der Kontaktierungsschicht 6 entspricht. Ist die Schrumpfung des Materials, aus dem die Kontaktierungsschicht 6 besteht, besonders gering, kann beispielsweise auch die Schichtdicke für die Dichtungsschichten 21a, 21b derart minimiert werden, dass die Dichtmaterial-spezifische minimale, allein durch die Dichtfunktion vorgegebene Dicke, eingestellt wird. Das elektrische Isolationsvermögen der Dichtung muss somit bei der Auswahl der Schichtdicke nicht mehr mitberücksichtigt werden.

Besonders bevorzugt ist die Trägerschicht 23 aus einem voroxidierten ferritischen Stahl ausgebildet, da somit der Arbeitsgang des Oxidierens der Trägerschicht 23 bei der Brennstoffzellen-Herstellung entfallen kann.

Die Merkmale der Ausführungsformen gemäß Fig. 1 und 2 können auch kombiniert werden, insbesondere kann auch bei einem Dichtungsaufbau 20 gemäß Fig. 1 eine Anpassung der Schrumpfscharakteristik durch Einlegen einer Trägerschicht 23, welche gegebenenfalls auch keine Al_2O_3 -Schicht aufweist, lediglich in der Funktion eines Abstandshalters eingesetzt werden.

10 Im Folgenden wird das erfindungsgemäße Verfahren beispielhaft näher erläutert:

Zur Herstellung des erfindungsgemäßen Dichtungsaufbaus 20 wird erfindungsgemäß eine Isolierschicht 22 auf einen Träger 7, 8, 23 aufgebracht. Der Träger kann dabei in besonders bevorzugten Ausführungsformen zum einen eine der Separatorplatten 7, 8 und zum anderen die Trägerschicht 23 sein.

Erfindungsgemäß wird auf den Trägern 7, 8, 23 in den Dichtungsbereichen 25 eine Isolierschicht 22, insbesondere aus Al_2O_3 , bevorzugt Al_2O_3 in der γ -Modifikation, angebracht. Hierbei wird das Material des Trägers 7, 8, 23 durch gezielte Oxidation mit der Isolierschicht 22 versehen.

25 Besonders vorteilhaft ist, für den Träger 7, 8, 23 einen Werkstoff zu verwenden, welcher Aluminium in ausreichend großer Menge, insbesondere in einer Menge $> 2\%$ enthält. Geeignete Werkstoffe hierfür sind z.B. die Werkstoffe mit den Nummern 1.4765 und 1.4767.

30

Das gezielte Oxidieren findet dabei bevorzugt $> 900^\circ\text{C}$, insbesondere bei Temperaturen $> 1050^\circ\text{C}$, statt.

Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird nach dem Herstellen der Isolierschicht 22 in den Dichtungsbereichen 25 der Separatorplatten 7, 8 auf die Isolierschicht 22 die Dichtungsschicht 21, beispielsweise in Form eines Dichtmaterialstrangs, aufgesetzt.

Im Falle der Anbringung der Isolierschicht 22 auf einer Trägerschicht 23, insbesondere eines Trägerblechs, wird der Dichtungs Aufbau hergestellt, indem im Dichtungsbereich 25 der Bipolarplatten 7 bzw. 8 ein Dichtmittelstrang zur Ausbildung einer ersten Dichtungsschicht 21a aufgebracht wird. Anschließend wird die die Isolierschichten 22 aufweisende Trägerschicht 23 auf die erste Dichtungsschicht 21a aufgesetzt, wobei auf die aufgesetzte Trägerschicht 23 wiederum in den Dichtungsbereichen 25 ein Dichtmittelstrang zur Ausbildung der zweiten Dichtungsschicht 21b angebracht wird. Die vorbeschriebene Schichtaufeinanderfolge ist derart zwischen zwei benachbarten Bipolarplatten 7, 8 zweier benachbarter Einzelbrennstoffzellen 2 angeordnet, dass entweder Zuführ- bzw. Abführkanäle für Brenngas oder Zuführ- bzw. Abführkanäle für Oxidationsgas ausgebildet werden, wobei die Brenngaskanäle jeweils mit Brenngasräumen 9 und die Oxidationsgaskanäle mit Oxidationsgasräumen 11 in Verbindung stehen.

Vorteilhaft bei der ersten geschilderten Ausführungsform ist, dass für die Montage eines Brennstoffzellenstapels gegenüber dem Stand der Technik keine zusätzlichen zu verbauenden Teile existieren und somit die Montage nicht erschwert wird, obwohl eine verbesserte Anpassung der Isoliereigenschaften und der Ausdehnungs- bzw. Schrumpfscharakteristiken des Dichtungsbaus, insbesondere eine mögliche Anpassung der Schrumpfung und des thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Dichtmasse an die entsprechenden Parameter der

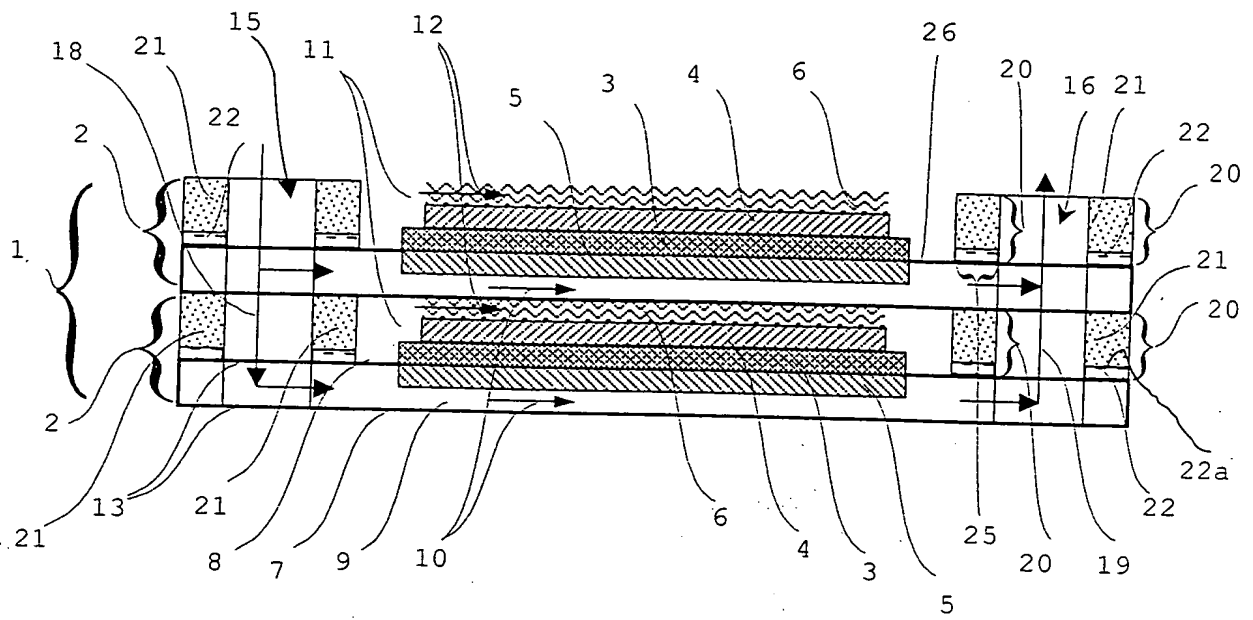
Kontaktierungsschicht 6 bzw. der Separatorplatten 7, 8 erreicht ist.

Bei der zweiten Ausführungsform des erfindungsgemäßen
5 Verfahrens ist von Vorteil, dass trotz eines zusätzlichen
Montageteils (Trägerschicht 23 mit Isolierschicht 22), welches
bei der Montage eines Brennstoffzellenstapels 1 zusätzlich
eingelegt werden muss, erreicht werden kann, dass die
Trägerschicht 23 zusammen mit der Isolierschicht 22
10 inkompressibel ist und deswegen eine Abstandshalterfunktion
übernehmen kann. Zudem ist es möglich, durch Variation der
Dickenverhältnisse der Trägerschicht 23 und der
Dichtungsschichten 21a, 21b die Schrumpfung des
Dichtungsaufbaus 20 der Schrumpfung der Kontaktierungsschicht
15 6 sowohl hinsichtlich des absoluten Endmaßes als auch im
Verlauf während des Schrumpfens anzupassen. In einem besonders
bevorzugten Fall können dabei die Dicken der
Dichtungsschichten 21a, 21b derart weit reduziert werden, dass
lediglich die für die Dichtfunktion vorgegebene Mindestdicke
20 vorliegt und somit eine Einsparung des relativ teuren
Dichtungsmittels, welches zur Ausbildung der
Dichtungsschichten 21a, 21b verwendet wird, erreicht werden
kann. Besonders vorteilhaft ist, dass die mit
Dichtungsmaterial zu füllende Spaltweite des Dichtungsspalt
25 erheblich reduziert werden kann und somit das Risiko des
Versagens der Dichtung erheblich reduziert wird.

Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft einen Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle und/oder einen Elektrolyseur, insbesondere ein Festoxid-Brennstoffzelle und/oder einen Festoxid-Elektrolyseur, wobei der Dichtungsaufbau (20) zwischen benachbarten Separatorplatten (7, 8) eines Zellenstapels (1) angeordnet ist, wobei der Dichtungsaufbau (20) zumindest zweischichtig ausgebildet ist und zumindest eine Isolierschicht (22) und zumindest eine Dichtungsschicht (21, 21a, 21b) aufweist.

EM 13866



Patentansprüche

1. Dichtungsaufbau für eine Brennstoffzelle und/oder einen Elektrolyseur, insbesondere ein Festoxid-Brennstoffzelle und/oder einen Festoxid-Elektrolyseur, wobei der Dichtungsaufbau (20) zwischen benachbarten Separatorplatten (7, 8) eines Zellenstapels (1) angeordnet ist, wobei der Dichtungsaufbau (20) zumindest zweischichtig ausgebildet ist und zumindest eine Isolierschicht (22) und zumindest eine Dichtungsschicht (21, 21a, 21b) aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass die Isolierschicht (22) auf einem Trägerelement (7, 8, 23) angeordnet ist.
2. Dichtungsaufbau nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Isolierschicht (22) ein Metalloxid ist.
3. Dichtungsaufbau nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Isolierschicht (22) aus Al_2O_3 ist, insbesondere in der Struktur der γ -Modifikation vorliegt.
4. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Dichtungsschicht (21, 21a, 21b) aus anorganischem Material besteht, insbesondere ein Glaskeramik-Lot ist.
5. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Dichtungsschicht (21, 21a, 21b) Zusätze aufweist, welche sicherstellen, dass die Dichtungsschicht (21, 21a, 21b) dem thermi-

schen Ausdehnungsverhalten des Materials einer Separatorplatte (7, 8) angepasst ist.

5 6. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägerelement eine Trägerschicht (23), insbesondere aus einem Stahlblech mit hohem Aluminiumgehalt ($> 2\%$, bevorzugt $> 4,5\%$), ist.

10 7. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Trägerschicht (23) aus einem ferritischen Stahl mit einem Chromgehalt von ca. 20% ausgebildet ist, insbesondere aus dem Werkstoff 1.4765 und/oder 1.4767.

15

8. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägerelement eine Separatorplatte (7, 8) ist, wobei die Isolierschicht (22) in den Dichtungsbereichen (25) angeordnet ist.

20

9. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Trägerelemente (7, 8, 23) zumindest in den Dichtungsbereichen (25) durch Voroxidation mit einer Isolierschicht (22) versehen sind.

25

10. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Dichtungsaufbau (20) in einem Brennstoffzellenstapel (1) angeordnet ist, wobei der Brennstoffzellenstapel (1) aus Einzelbrennstoffzellen (2) aufgebaut ist, welche turmartig übereinander gestapelt sind.

30

11. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Einzelbrennstoffzellen (2) eine Elektrolytschicht (3), eine Kathodenschicht (4) und eine Anodenschicht (5) aufweisen, wobei die Anodenschicht (5) auf einer tragenden Substratschicht angeordnet ist.

12. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Isolierschicht (22) zwischen zwei benachbarten Einzelbrennstoffzellen (2) auf einer einem Oxidationsgasraum (11) zugewandten Oberseite (26) einer der Separatorplatten (7, 8) angeordnet ist.

13. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Isolierschicht (22) zwischen zwei benachbarten Separatorplatten (7, 8) einer Einzelbrennstoffzelle (2) im Bereich der Dichtungsbereiche (25) auf zumindest einer der Separatorplatten (7, 8) angeordnet ist.

14. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Dichtungsschicht (21) auf einer freien Oberfläche (22a) der Isolierschicht (22) angeordnet ist.

15. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Dichtungsschicht (21) aus einem anorganischen Material ausgebildet ist, das mittels Zusätzen an den thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Separatorplatten (7, 8) angepasst ist.

16. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Isolier-

schicht (22) auf dem Trägerelement (7, 8, 23) eine größere Fläche als sie von in der Dichtungsschicht (21) benötigt wird bedeckt.

- 5 17. Dichtungsaufbau nach einem oder mehreren der vorangegangenen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen der Isolierschicht (22) und einer benachbarten Separatorplatte (7,8) eine erste Dichtungsschicht (21a) und zwischen der Trägerschicht (23) und deren benachbarter Separatorplatte
10 (7, 8) eine zweite Dichtungsschicht (21b) angeordnet ist.
18. Verfahren zum Herstellen eines Dichtungsaufbaus (20) für eine Brennstoffzelle und/oder einen Elektrolyseur, insbesondere für eine Festoxid-Brennstoffzelle und/oder einen Festoxid-Elektrolyseur, insbesondere nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 17, aufweisend die Schritte:
- 15
- Herstellen zumindest einer Isolierschicht (22) auf einem Trägerelement (7, 8, 23);
 - 20 - Herstellen zumindest einer Dichtungsschicht (21, 21a, 21b) aus einem Dichtungsmaterial, wobei der Dichtungsaufbau (20) in einem Dichtungsbereich (25) eines Brennstoffzellenstapels angeordnet wird.
- 25 19. Verfahren nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet dass die Isolierschicht (22) durch zumindest bereichsweises Oxidieren des Trägerelements (7, 8, 23) hergestellt wird.
- 30 20. Verfahren nach Anspruch 18 und/oder 19, dadurch gekennzeichnet, dass das Oxidieren in einem Temperaturbereich oberhalb von 900° C, insbesondere oberhalb von 1050°C, erfolgt.

21. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 18 bis 20, dadurch gekennzeichnet, dass nach dem Herstellen der Isolierschicht (22) die Dichtungsschicht (21) in Form eines Dichtmaterialstrangs aufgesetzt wird.

5

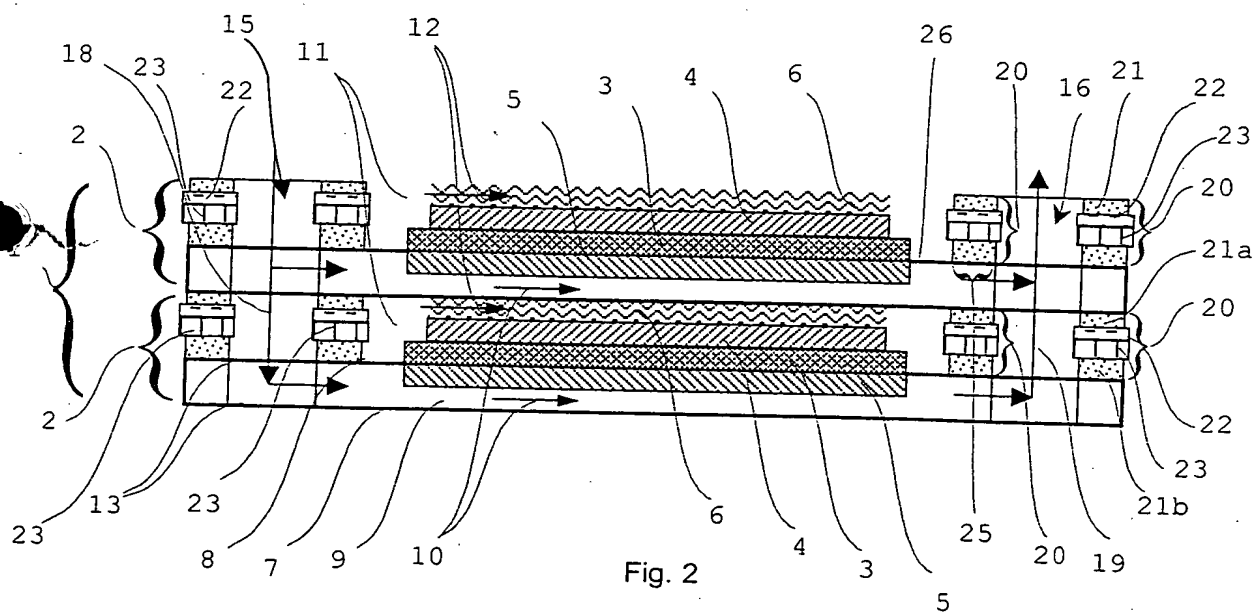
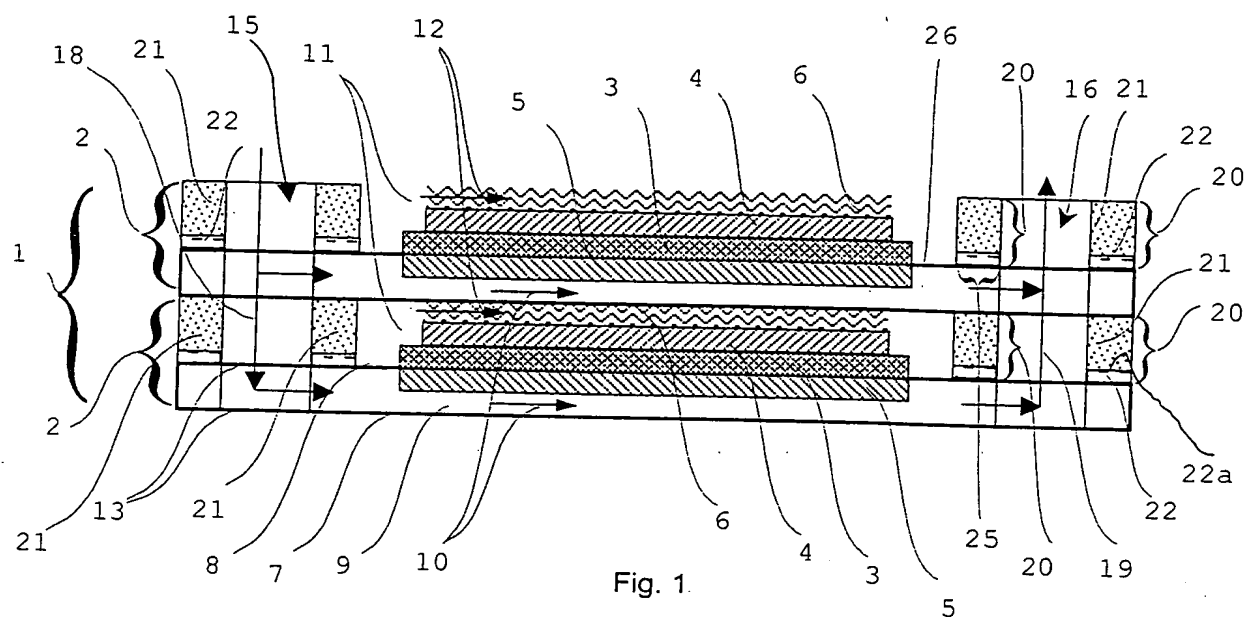
22. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 18 bis 21, dadurch gekennzeichnet, dass im Dichtungsbereich (25) der Separatorplatten (7, 8) ein Dichtmittelstrang zur Ausbildung einer ersten Dichtungsschicht (21a) aufgebracht wird, die die Isolierschicht (22) aufweisende Trägerschicht (23) auf die erste Dichtungsschicht (21a) aufgesetzt wird und auf die aufgesetzte Trägerschicht (20) in den Dichtungsbereichen (25) ein Dichtmittelstrang zur Ausbildung der zweiten Dichtungsschicht (21b) angebracht wird.

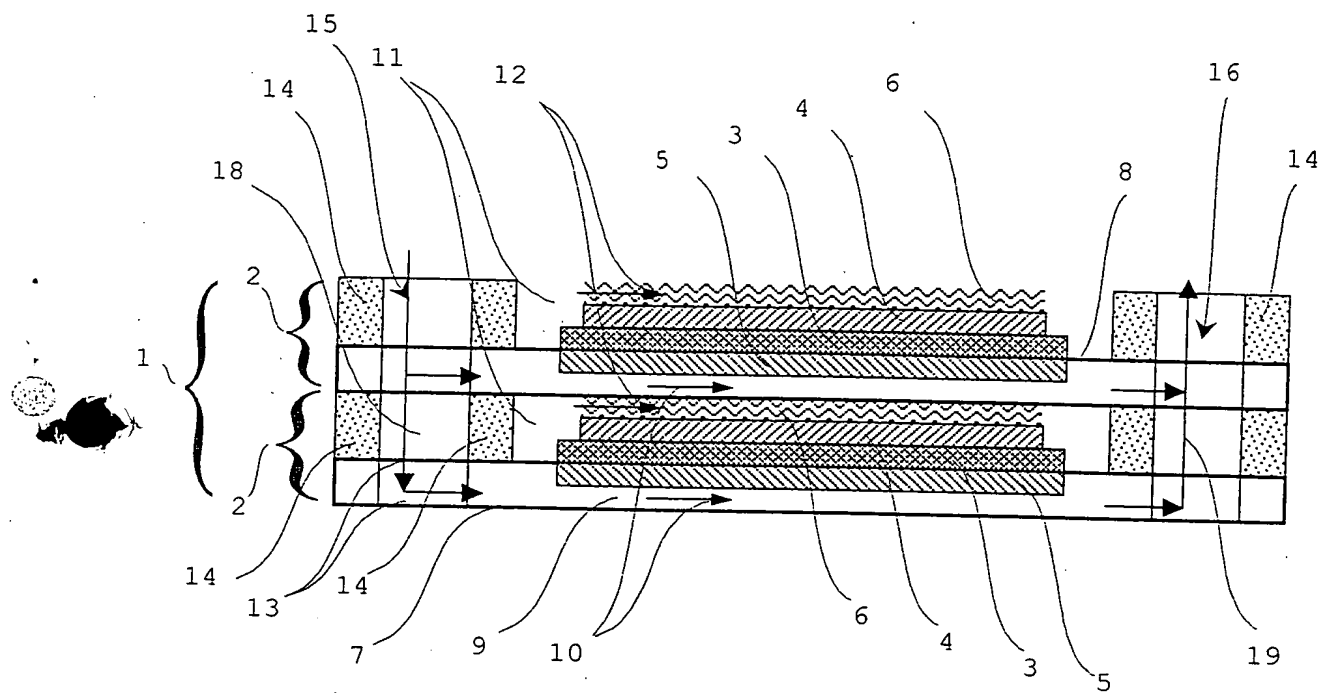
10

15

23. Brennstoffzelle bzw. Elektrolyseur, insbesondere Festoxid-Brennstoffzelle bzw. Festoxid-Elektrolyseur, aufweisend einen Dichtungsaufbau (20) nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 18.

20





Stand der Technik

Fig. 3